

BEST AVAILABLE COPY

REC'D PCT/PTOPS/JIBUN 2004 13

REC'D 24 JAN 2003 27 12:02
WIPO PCT

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年12月27日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-397799

[ST.10/C]:

[JP2001-397799]

出 願 人

Applicant(s):

小 貫 英 雄

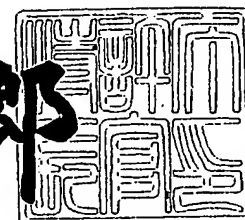
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2002年11月22日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2002-3091802

【書類名】 特許願

【整理番号】 1015192

【提出日】 平成13年12月27日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 C03C 27/00
B01J 19/12

【発明の名称】 透明物質の接合方法

【請求項の数】 6

【発明者】
【住所又は居所】 茨城県つくば市吾妻2-820-5
【氏名】 小貫 英雄

【特許出願人】
【識別番号】 597049662
【氏名又は名称】 小貫 英雄

【代理人】
【識別番号】 100077517
【弁理士】
【氏名又は名称】 石田 敬
【電話番号】 03-5470-1900

【選任した代理人】
【識別番号】 100092624
【弁理士】
【氏名又は名称】 鶴田 準一

【選任した代理人】
【識別番号】 100087413
【弁理士】
【氏名又は名称】 古賀 哲次

【選任した代理人】
【識別番号】 100082898

【弁理士】

【氏名又は名称】 西山 雅也

【選任した代理人】

【識別番号】 100081330

【弁理士】

【氏名又は名称】 樋口 外治

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 036135

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 透明物質の接合方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも 1 方が紫外光に対して透明な媒質からなる 2 つの物質の間にアルコキシドを存在させ、そのアルコキシド部分に紫外光を照射することにより、当該 2 物質を接合することを特徴とする透明物質の接合方法。

【請求項 2】 前記 2 物質の接合面に相当する部分を予め研磨し、当該表面を平滑化する工程を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の透明物質の接合方法。

【請求項 3】 前記 2 物質の間にアルコキシドを存在させる工程の前に、2 物質の接合部分を予め洗剤あるいは溶剤で洗浄、あるいは超音波洗浄、あるいは 2 物質の接合部分に紫外光を照射する光洗浄、あるいはこれらの洗浄方法のいくつかを組合せた洗浄をすることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の透明物質の接合方法。

【請求項 4】 紫外光を吸収する空気中の分子を排除するため、窒素ガスあるいは稀ガスの雰囲気中で前記紫外光照射を行うことを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の透明物質の接合方法。

【請求項 5】 前記紫外光照射工程中に、前記 2 物質に両側から機械的圧力を加えることを特徴とする請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の透明物質の接合方法。

【請求項 6】 前記 2 物質の一方が紫外光に対し透明でない物質であることを特徴とする請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の透明物質の接合方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明はアルコキシドを接着材料とし、紫外光で当該アルコキシドの部分に照射することにより、透明物質を接合する方法に係る。

【0002】

【従来の技術】

透明な物質を接着あるいは接合した時、当該物質を透過する光の短波長の限界は、使用する接着材料の透過できる光の短波長限界で制限される。例えば、ガラスを有機系接着剤を用いて接着した場合の接着ガラスの光透過性は有機系接着剤の光透過性で制限される。現在使用されている接着材の短波長限界はおおよそ 350 nm である。

そのため 350 nm より短い波長である紫外光に透過性が必要な場合、例えば、石英ガラスが使用されるが、一枚の石英ガラスでは製造できる寸法に制限があり、そのようなときに従来の有機系接着剤を用いて接着したのでは、せっかくの紫外光透過性の特質が接着部分で失われるという問題がある。

【0003】

接着材料を用いない接着方法として、接着させる物質を高温に加熱し溶融させ接着する方法がある。しかし、この場合には接着部分の物質の屈折率の歪み、平面性の低下等によりその光学的及び幾何学的形状特性が劣化する問題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

そこで、本発明は、従来技術の上記のような現状に鑑みて、従来よりも短波長の紫外光を透過でき、簡便で、高品質の接着、接合方法を提供することを目的とする。

【0005】

上記の課題に関連する先行技術として紫外光励起によるアルコキシドの薄膜ガラス化技術が存在する。例えば「Applied Physics Letter, Vol. 69, No. 4 (1996) p. 482」に開示されている。これによれば、アルコキシドをシリコンウェハーに塗布して紫外光を照射するとその表面に石英ガラス（シリカガラス）の薄膜層が形成されることが記載され、このアルコキシドを塗布する前において紫外光をシリコンウェハー上に照射することも開示されている。

【0006】

また、特許第 2901963 号には、このようなアルコキシドを原料にした光励起による薄膜形成法の応用例として、テレビのブラウン管表面の反射防止膜の形

成や機能性有機物のドーピング、光触媒の製造、微細パターン膜の形成、光感光性材料等の薄膜化などに採用出来ることが記載されている。

しかし、これらの先行技術は、短波長の紫外光を透過でき、簡便で、高品質の接着、接合方法に関するものではない。

【 0 0 0 7 】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記目的を達成するために鋭意努力検討し、少なくとも1方が紫外光に透明な物質はアルコキシドを接着剤とし紫外光を照射すれば接着できること、しかもその接着部分は紫外光に対して透明であることを確認して、紫外光に対し透明で且つ室温で簡便に行える高品質の接着、接合方法を開発することに成功したものである。すなわち、本発明によれば下記発明が提供される。

【 0 0 0 8 】

(1) 少なくとも1方が紫外光に対して透明な媒質からなる2つの物質の間にアルコキシドを存在させ、そのアルコキシド部分に紫外光を照射することにより、当該2物質を接合することを特徴とする透明物質の接合方法。

【 0 0 0 9 】

(2) 前記2物質の接合面に相当する部分を予め研磨し、当該表面を平滑化する工程を含むことを特徴とする前項に記載の接合方法。

【 0 0 1 0 】

(3) 前記2物質の間にアルコキシドを存在させる工程の前に、2物質の接合部分を予め洗剤あるいは溶剤で洗浄、あるいは超音波洗浄、あるいは2物質の接合部分に紫外光を照射する光洗浄、あるいはこれらの洗浄方法のいくつかを組合せた洗浄をすることを特徴とする前項(1)(2)に記載の接合方法。

【 0 0 1 1 】

(4) 紫外光を吸収する空気中の分子を排除するため、窒素ガスあるいは希ガスの雰囲気中で前記紫外光照射を行うことを特徴とする前項(1)～(3)に記載の接合方法。

【 0 0 1 2 】

(5) 前記紫外光照射工程中に、前記2物質に両側から機械的圧力を加えるこ

とを特徴とする前項（１）～（４）に記載の接合方法。

【 0 0 1 3 】

（６）前記２物質の一方が紫外光に対し透明でない物質であることを特徴とする前項（１）～（５）に記載の接合方法。

【 0 0 1 4 】

【発明の実施の形態】

本発明の紫外光透明物質の接合方法は、接合する２物質のうち少なくとも１方が紫外光に透明な媒質からなる物質を接合することが目的である。より正確には紫外光に透明な媒質の接合を行いかつ接合部がなお紫外光に透明である接合方法を提供することを目的とするものである。

【 0 0 1 5 】

紫外光に透明な媒質としては、石英ガラスが代表的であるがこれに限定されない。石英ガラスは 1 6 0 n m 程度までの波長の光を透過する。なお、普通ガラスは 3 7 0 n m 付近までの波長しか透過性がなく、本発明でいう紫外光透明物質ではない。このように紫外光透明性がない物質では本発明の方法を利用できないし、利用する意味もない。ただし、一体の物質全体が紫外光透過性の媒質からなるものでなくても、接合部が紫外光透過性の媒質であれば本発明を適用できることは明らかである。

【 0 0 1 6 】

また、本発明で接合する２つの物質の少なくとも１方は紫外光透明である必要があるが、もう１方の物質は紫外光透明物質に限定されない。従って、もう１方の物質は普通ガラスその他のガラスというまでもなく、各種の無機固体誘電体物質、金属、半導体、有機物質などのいずれでもよい。例えば、銅版、シリコン板、プラスチック板、たんぱく質薄膜などである。

【 0 0 1 7 】

本発明は、上記のように少なくとも１方が紫外光透明の物質をアルコキシドを接合剤として用い、かつ紫外光を照射して接合することを特徴とするものである。

なお、本発明において接合は接着を含む概念として用いている。

本発明者は、アルコキシドが紫外光を吸収して分解し、ガラスその他の無機および有機固体物質と結合を形成して、1種の接着剤（接合剤）として作用すること、しかも接合を形成した後では紫外光を透過する性質を有することを見出し、確認した。紫外光照射後のアルコキシドは一般的にはガラス化しているものと考えられる。

【0018】

本発明は原理に制約されることは意図しないが、アルコキシドが接合作用を示す理由としては、アルコキシドとしては特にガラス用途ではケイ素アルコキシドが有用であるが、テトラメチルオキシシラン（TEOS）、テトラエチルオキシシラン（TMOS）などのケイ素アルコキシドは紫外光を照射すると有機基を放出して分解してケイ素-酸素結合部分が各種の無機物質あるいは有機物質との間での結合を形成することが可能にされるので、無機物質あるいは有機物質のいずれでもアルコキシドで接合することが可能になるものと考えられる。ケイ素アルコキシドは理想的にはガラス化して SiO_2 になるが、本発明の目的からは必ずしも完全にガラス化して SiO_2 にならなくてもよく、必要な接合および紫外光透過性が得られれば目的は達成される。また上記ではケイ素アルコキシドについて説明したが、その他のアルコキシドであるジルコニウムアルコキシド、チタンアルコキシド、イットリウムアルコキシド、ゲルマニウムアルコキシドなど金属アルコキシドその他のアルコキシドおよびそれらの混合物でも同様に反応することは明らかであり、実験的にも確認している。またアルコキシド基も特に限定されず、またモノマーのみならず、オリゴマー、ポリマー化したものでもよい。製造条件として塗工性や分解揮発成分（有機基）の大きさなどが考慮されて好適なものを選択すればよい。

【0019】

アルコキシドはそのままで接合部に塗布その他の方法で存在させてもよいが、アルコールや水などの溶剤を加えて溶液にしたものを適用してもよい。特に少量の水あるいはさらに触媒物質を存在させることにより加水分解等の反応が促進される効果が奏されるので好ましい。

【0020】

また本発明において紫外光は、波長が350nm以下の短波長の光を言う。本発明は260nmより短波長、さらには200nmより短波長の真空紫外光も好適に用いられる。

本発明で用いる紫外光の光源は限定されないが、例えば、254nm付近に波長がある低圧水銀灯、172nm付近に波長があるエキシマランプなどを例示することができる。またアンジュレータを含む放射光も使用できる。光源は紫外光を含んでいればよく、またレーザー光源でもよい。

【0021】

紫外光を照射する場合、空気中には紫外光を吸収する物質、特に酸素が含まれているので、被接合物質を囲む雰囲気を窒素や稀ガスで少なくとも部分的に置換してあるいは真空中で紫外光照射することが照射効率の点から好ましい。

紫外光を照射する条件、すなわち、波長、強度、時間、雰囲気、温度などは適宜選択すればよいが、本発明はガラス溶融接合法のように高温加熱する必要がないので、被接合物質を熱損傷しないことは利点である。例えば、室温でもよい。

【0022】

以下、本発明により2物質を接合する方法を図面を参照してより具体的に説明する。

本発明の紫外光透明物質の接合方法は、例えば、図1、2に示す如く、2枚の石英ガラスを重ねて張り合わせる接着にも利用でき、実際に2枚の紫外光透明物質の板の主面どうしを重ねて張り合わす接着の有用性は明らかであり、各種の応用が考えられる。2枚以上の石英ガラスを横方向に接合してより大面積の石英ガラス板を製作し、かつその拡大面積石英ガラス板が紫外光透明であるような製品を製造する場合にも、本発明は特に有用であると考えられる。例えば、半導体製造工程での光洗浄（紫外光洗浄）の光源装置にエキシマランプが用いられているが、エキシマランプは窒素雰囲気中に置く必要があるため、光取出し窓に石英ガラスが用いられている。従って、1枚の石英ガラスの寸法が光源の寸法を制約しているので、本発明によって製造される紫外光透過性のある接合をした石英ガラスを用いれば寸法の制約がないので、所望の大きさの光源装置を製造する可能性を提供する。このように2枚以上の板材を接合する方法の例を図2、図3、図4

に示す。これらの図において、1 a, 1 b はガラス板、2 はガラス積層体、3 は接合部、4 は接合用小板、6 は光源、7 は紫外光である。図 3、4 の (a) (b) (c) (d) の如く各種の形状で 2 枚のガラス板 1 a, 1 b をつぎ合わせ、あるいは (e) の如く端部を重ね合わせ、あるいは (f) の如く接合用小板 4 を用いて接合すればよい。

【0023】

基本的には、2 物質の一方あるいは両方にアルコキシド液を付着あるいは塗布し、当該物質を重ね合わせあるいはつなぎ合わせ、アルコキシドを含む部分に紫外光を照射することにより、あるいは 2 物質の間にアルコキシド液を注入しアルコキシドを含む部分に紫外光を照射することにより、アルコキシドをガラス化させるとともに接着の効果を生じさせ、2 物質を接合（接着）させることができる。（図 2 参照）

【0024】

2 物質の接着面に相当する部分を予め研磨し、当該表面を平滑化する工程を有することが好ましい。

【0025】

さらに、前記接着工程において、接着性を高めるために、2 物質の接着面に相当する部分を洗浄する工程を有することがより好ましい。洗浄方法としては、予め洗剤あるいは溶剤で洗浄、あるいは超音波洗浄、あるいはこれらの洗浄方法のいくつかを組合せた洗浄のほか、特に、接合部分に紫外光を照射し予め当該部分を光洗浄する方法が効果的である。

【0026】

上記の如く、接着工程において、紫外光を吸収する空気中の分子を排除し紫外光を効率良く利用するために、窒素ガスあるいは稀ガスの雰囲気中で紫外光を 2 物質に照射することが好ましい。図 5 を参照すると、ガラス板積層体 2 を光源 6 と共に雰囲気室 8 に入れ、室内の雰囲気 9 を窒素ガスや不活性ガスで置換して紫外光 7 を照射することが好ましい。

【0027】

さらに、接着工程において、アルコキシドを含む部分に紫外光を照射する工程

中に、2物質に両側から機械的圧力を加えて、接着性を高めることが好ましい。

【0028】

【発明の実施例】

以下、本発明の実施例を説明するが、以下の実施例は、本発明を好適に説明する一例に過ぎず、本発明をなんら限定するものではない。

(実施例1)

図1に示すように、厚さ1mm、一辺が2cmの正方形の石英ガラス板を2枚1a、1b用意し、各石英ガラス板の一つの面にアルコキシドであるテトラメチルオキシシラン(TMOS) [成分はTMOSモノマー91.8%、TMOSオリゴマー3.4%、水・メタノール4.8%] を1滴たらし、TMOSで濡れた石英ガラスの面同士を重ね合わせた後、この2枚の石英ガラス板2に、図2に示すように、キセノンエキシマーランプ6からの波長172nmにピークを持つ紫外光7を60分間照射した。この時のキセノンエキシマーランプ6と石英ガラス板2との距離は2cmであった。

【0029】

その結果、2枚の石英ガラス板2は強固に接着された。接着した2枚の石英ガラス板2の紫外領域の吸収スペクトルを測定したところ、波長160nmから短波長領域で吸収を示した。これは石英ガラス固有の吸収であり、このことから接着石英ガラス2は160nmまで紫外光を透過していることが証明された。

【0030】

(実施例2)

実施例2では、実施例1での石英ガラス板2にTMOSをたらす工程を行なう前に、石英ガラスの接着に相当する部分を予め光学研磨し、平滑化を行なった。具体的には10μm四方の面積における平均の凹凸は最大-最小で35nmのレベルまで研磨を行なった。

その結果、実施例1の時よりも2枚の石英ガラス2の間隙は狭まり、接着性が格段に向上した。

【0031】

(実施例3)

実施例3では、実施例1において行なわれている各石英ガラス板にTMO Sを
たらず工程の前に、接着する部分を予め溶剤あるいは洗剤で洗浄、あるいは超音
波洗浄、あるいは、接着する部分に紫外光を20分間照射する光洗浄を、あるい
はこれら総ての洗浄を行なった。これらの洗浄により、2枚の石英ガラス板2は
接着し、実施例1にくらべ接着が格段に向上した。

【0032】

(実施例4)

実施例4では、実施例1において行なわれている紫外光を照射する工程におい
て、紫外光を吸収する空気中の酸素分子を排除するため、図5に示すように、キ
セノンエキシマーランプ6と石英ガラス板2を密閉容器8の中に収め、窒素ガス
を充填させ、あるいは窒素ガスを定常的に流しながら、窒素ガス雰囲気中9で紫
外光を石英ガラス板2に20分間照射した。

実施例1と比べ、照射時間が明らかに短縮された。

【0033】

(実施例5)

実施例5では、実施例1において行なわれているアルコキシドを含む部分に紫
外光を照射する工程中に、重ね合わせた2枚の石英ガラス板2の中央の一部を上
下から押し付ける道具を用い、機械的圧力を加えた。

その結果、2枚の石英ガラス板2の間隙のむらが少なくなり、密着性が良くな
った。

【0034】

(実施例6)

実施例6では、実施例1において行なわれる2枚の石英ガラス2の一方を、紫
外光に対して透明でない銅板、シリコン板、アクリル板、あるいはプラスチック
板に代え、接着を行なった。紫外光の照射は当然のことながら石英板側から行な
った。

その結果、いずれの組み合わせに対しても確実に接着していることを確認でき
た。

【0035】

ガラス部品の接着は、前記実施例に示すような2枚のガラスを重ね合わせる場合に限定されず、例えば、図3、図4の(a), (b), (c), (d)に示すように、ガラス板の縁部に互いに適合する形状を施して、それらを突き合わせることで一体化した平板を形成すること、またガラス板の縁部同士を突き合わせる構造に限定されることなく、(e)に示すようにガラス板同士を重ね合わせる構造や、(f)に示すようにガラス板に対して他の接合用小板を用いる構造も可能であることも確認される。さらに、化学分析などに用いる直方体の石英ガラスセルを5枚の石英ガラス板を張り合わせて作成したりあるいは石英ガラスの器具を作成することに本接合方法を用いること、また光学部品の作成やレンズの張り合わせ等において各要素の接着に本接合方法を用いることが可能であることも確認される。

【0036】

【発明の効果】

本発明によれば、短波長の紫外光に対して透明な物質を、室温で接合し、しかも紫外光を透過させることが可能にされる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

ガラス板の形状を示す図。

【図2】

光源からの紫外光をガラス板に照射している状態を示す図。

【図3】

本発明のガラスの接着方法の他の実施形態を示す図。

【図4】

本発明のガラスの接着方法の他の実施形態を示す図。

【図5】

窒素ガスの雰囲気にある容器中での、光源からの光を石英ガラス板に照射している状態を示す図。

【符号の説明】

1 a, 1 b …ガラス板

2…石英ガラス板 1 a, 1 b を重ね合わせたガラス積層体

3…接合部

4…接合用小板

6…光源

7…紫外光

8…雰囲気室

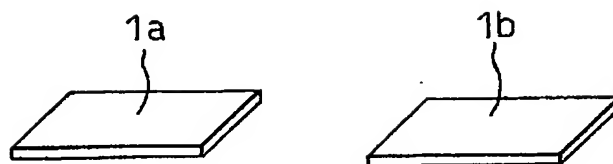
9…ガス雰囲気

【書類名】

図面

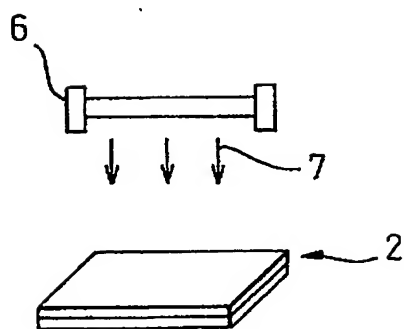
【図1】

図1



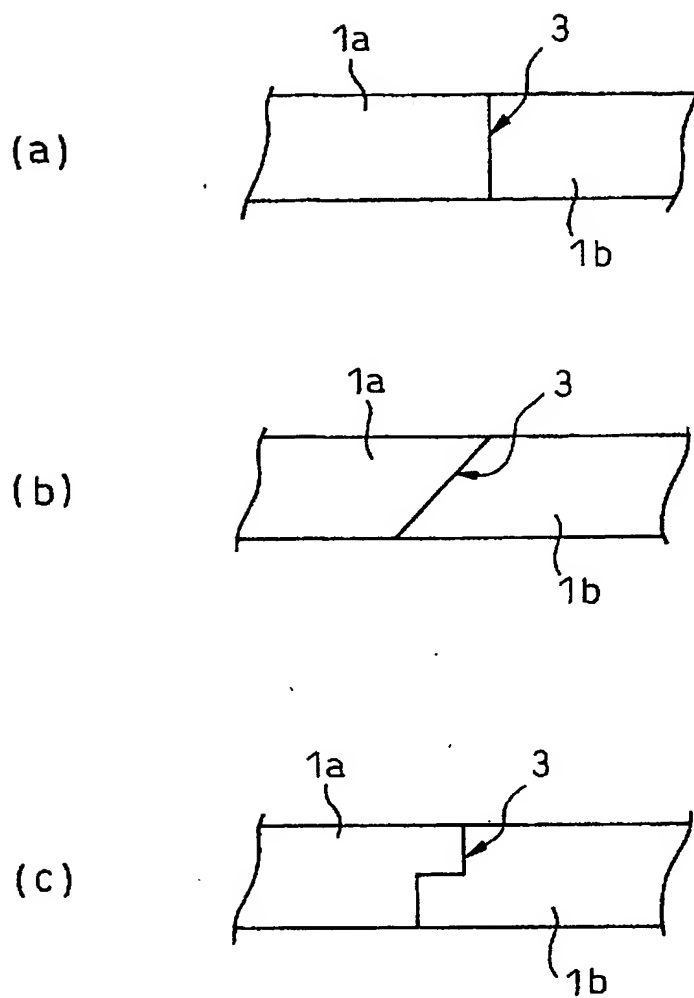
【図2】

図2



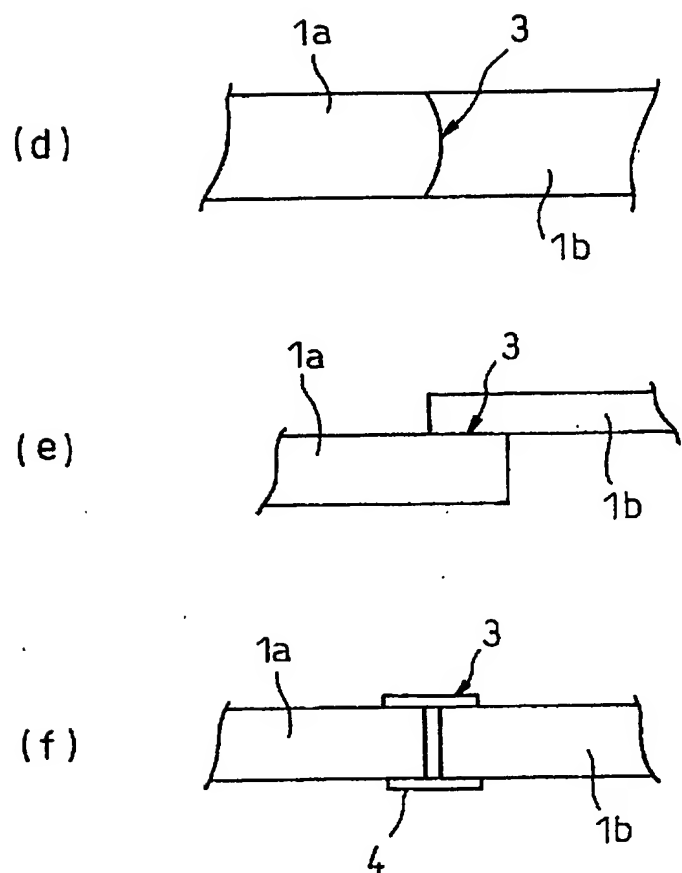
【図3】

図3



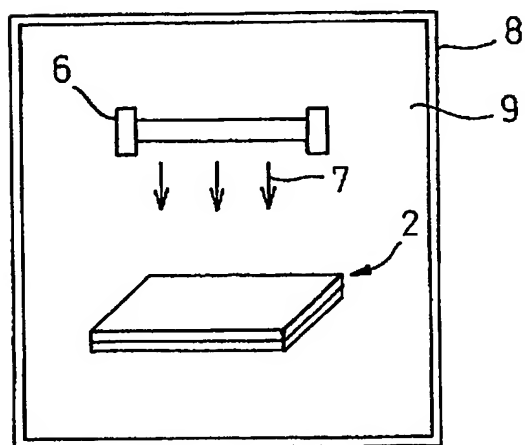
【図4】

図4



【図5】

図5



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 短波長紫外光に対し透明な物質とりわけ石英ガラス板など同士の接合を、室温で簡便に実施し、石英ガラスなどの固有の短波長の限界まで光を透過することができる接合方法を提供する。

【解決手段】 アルコキシドを接合材料とし、接合部分に紫外光を照射することにより、2つの物質を接合する。

【選択図】 図5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [597049662]

1. 変更年月日	2001年 9月25日
[変更理由]	住所変更
住 所	茨城県つくば市吾妻2-820-5
氏 名	小貫 英雄

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.